

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-157659

(43) 公開日 平成8年(1996)6月18日

(51) Int.Cl. ⁶ C 0 8 L 23/12 C 0 8 J 5/18	識別記号 L C E L C H L C P C E S	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 6 頁)				
(21) 出願番号	特願平6-307865		(71) 出願人	000002141 住友ベークライト株式会社 東京都品川区東品川 2 丁目 5 番 8 号
(22) 出願日	平成 6 年 (1994) 12 月 12 日		(72) 発明者	江畑 俊洋 東京都千代田区内幸町 1 丁目 2 番 2 号 住 友ベークライト株式会社内

(54) 【発明の名称】 ポリプロピレン系シート

(57) 【要約】

【目的】 剛性、耐衝撃性、防湿性、透明性、成形性に優れ、厚生省告示第20号に適合し、従来のよりもアルミシール後のカールが大きく抑制されたPTP用ポリプロピレン系シートを提供するものである。

【構成】 結晶核剤含有率0.002～0.3重量%のポリプロピレン単独重合体 57～84重量%、エチレン含有率0.1～5.0重量%のエチレン-プロピレンランダム共重合体 10～25重量%、石油樹脂1～8重量%、水添スチレン-ブタジエン共重合体または水添スチレン-イソブレン共重合体 5～10重量%からなるPTP用ポリプロピレン系シート。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 結晶核割合含有率0.002～0.3重量%のポリプロピレン単独重合体57～84重量%、エチレン含有率0.1～5.0重量%のエチレン-ポリプロピレンランダム共重合体10～25重量%、石油樹脂1～8重量%及び熱可塑性エラストマー5～10重量%からなることを特徴とするPTTP用ポリプロピレン系シート。

【請求項2】 熱可塑性エラストマーがスチレン含有率11～35重量%の水素添加スチレン-ブタジエン共重合体またはスチレン含有率11～35重量%の水素添加スチレン-イソプレン共重合体であることを特徴とする請求項1記載のポリプロピレン系シート

【請求項3】 石油樹脂が脂族炭化水素樹脂であることを特徴とする請求項1記載のポリプロピレン系シート。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は錠剤、カプセル等の医薬品の包装に用いられるプレス・スルー・バック包装（以下PTTP包装と略す）用のポリプロピレン系シートに関するものである。

【0002】

【従来の技術】PTTP包装とは錠剤、カプセル等の医薬品の包装に使用される包装形態のことで、プラスチックシートを必要なポケット形状に成形し、得られたポケット部分に内容物（錠剤、カプセル等）を充填し、接着剤を塗布したアルミ箔を蓋のようにシールする包装形態をいう。充填された内容物は、シート成形部分を指で押すことによりアルミ箔を突き破って取り出される。従来から、PTTP包装用シートに使用されるベース樹脂としては、透明性・成形性・剛性・アルミシール後のカール性等の性能の優秀さ及びコスト面から、主としてポリ塩化ビニル樹脂が使用されてきた。しかしながら内容物である医薬品が吸湿を候う場合には、ポリ塩化ビニル樹脂は防湿性に劣るため、ポリ塩化ビニル樹脂シートに防湿性の優れるポリ塩化ビニル樹脂をコーティングすることによって、防湿性を向上させるという方法が行われている。またPTTP包装自体を、アルミによりビロ-包装することにより防湿性を向上させるという方法もとられている。しかしながら、どちらの方法も工数がかかりコストアップとなるため、そのような方法を改善するべく検討が行われている。また近年、ポリ塩化ビニル樹脂やポリ塩化ビニル樹脂は、焼却処理の際に塩素ガスが発生するという環境面からの問題があり、敬遠されつつあるというのが現状である。以上のような問題から、ポリ塩化ビニル樹脂やポリ塩化ビニル樹脂にかわるPTTP用材料としてポリプロピレン樹脂の検討が行われ、実際に一部、ポリプロピレン樹脂が使用されている。しかしながらポリプロピレン樹脂はポリ塩化ビニル樹脂と比較して、防湿性、コスト面には優れているが、成形

性、透明性、衝撃性に劣っており、またアルミシール後のカールが大きいという問題もある。

【0003】中でも特に成形性については、ポリプロピレン樹脂はポリ塩化ビニル樹脂と比較して成形性が劣っている。一般的に成形性は、成形可能な温度幅により評価されており、ポリ塩化ビニル樹脂の方が成形温度幅が広い。成形性の改良方法として、ポリプロピレン樹脂に石油樹脂を添加する方法（特開昭9-143613号公報、特開平2-302445号公報）、ポリプロピレン樹脂にランダムポリプロピレンを添加する方法（特開昭53-66952号公報）が知られている。前者の場合、成形性、透明性は改良されるが、加熱成形される際、粘着を起こし不透明な製品になり、成形温度幅が狭くなったり、成型時の加熱により伸びが発生しビッチズレを起こすため均一な成形が出来ないという問題がある。また最終製品でカールを起すため商品価値を損なったり、集積時の問題も生じる。また石油樹脂の添加量の増大に伴い、n-ヘプタンを溶媒とする残留モノマーや低分子量化合物の抽出量が多くなり、厚生省告示第20号に不適合となる。後者の場合は、添加量の増大により、剛性温度幅は広がるが、添加量増大と共に、シートの剛性が低下するという問題がある。剛性の小さいシートを高速成形機にかけた場合、シートにかかるテンションが強いいためシートが伸びて、縦ジワが発生するという問題がある。従って、シートに縦ジワが発生しない程度のシートの剛性は必要であり、シートの剛性を維持したままカールを抑制し、成形性を保持させることは従来困難であった。

【0004】また耐衝撃性についてはホモポリプロピレンのみでは、常温、低温どちらの温度においても耐衝撃性は低い。耐衝撃性の改良方法としてはホモポリプロピレンにランダムポリプロピレンを添加する方法や熱可塑性エラストマーを添加する方法が知られている。前者の場合、常温での衝撃性は大きく改善されるが、低温においては衝撃性の改良はほとんど認められない。後者の場合、添加量増大に伴い耐衝撃性は改良されるが、同時に剛性、防湿性の低下や透明性の低下という問題があった。カールについては、ポリプロピレン樹脂は、ポリ塩化ビニル樹脂と比較して、線膨張係数が大きいため、アルミシール後の収縮が大きく、そのため製品がアルミ箔と反対側にカールして商品価値を損なわり、自動包装ライン上での集積不能等のトラブルが発生するというような問題があった。カールを改良するための方法が、多層シートにおいてなされており、外層に高剛性の高結晶性ポリプロピレンを使用する事により、剛性を大きくし、さらに内層のシラント層にランダムポリプロピレンを導入することにより、シール温度を下げ、カールを抑制する方法（特開平5-170225

9号公報)が挙げられる。前者の方法では、カールはほとんど改良されず、後者の方ではカールは改良されるが、反対にシート成形性、透明性が著しく悪くなり、実使用に耐えるシートが得られなかった。以上のように、剛性、耐衝撃性、透明性、成形性、防湿性、アルミシール後の低カール性というPTP用シート要求性能に対して、従来からのポリプロピレンシートは上記要求性能のうち、ある要求性能を満足させることが出来ても、その他の要求性能を満足させることが出来ないという状況にあり、上記全ての要求性能を満たすことの出来るポリプロピレンシートはないというのが現状であった。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、前述の問題を解決するため種々の検討の結果なされたもので、その目的とするところは、ポリプロピレン単独重合体に結晶核剤、石油樹脂、エチレン-αプロピレンランダム共重合体、水素添加スチレン-ブタジエン共重合体または水素添加スチレン-イソブレン共重合体を添加することにより、剛性、耐衝撃性、防湿性、透明性、成形性に優れ、厚生省告示第20号に適合し、従来よりもアルミシール後のカールが抑制されたPTP用ポリプロピレンシートを提供することにある。

【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は、結晶核剤含有率0.002～0.3重量%(wt%)のポリプロピレン単独重合体(以下ホモポリプロピレンと略す)57～84wt%、エチレン含有率0.1～5.0wt%のエチレン-αプロピレンランダム共重合体(以下ランダムポリプロピレンと略す)10～25wt%、石油樹脂1～8wt%及び熱可塑性エラストマー5～10wt%からなることを特徴とするPTP用ポリプロピレンシートである。

【0007】本発明に用いられる結晶核剤は有機系核剤あるいは高融点ポリマー核剤で、剛性付与及び透明性の向上を目的として添加される。結晶核剤には有機系核剤、無機系核剤、高融点ポリマー核剤があるが、無機系核剤は透明性を阻害するため使用できない。有機系核剤としては、ソルビトール系誘導体、ジフルオロペンタ酸金属塩、芳香族カルボン酸の金属塩、有機リン酸の金属塩等が挙げられる。高融点ポリマー核剤はポリビニルクロヘキサン、ポリビニルシクロペンタン、ポリ3-メチルペンテン-1、ポリ3-メチルブテン-1、アルケニルシラン等が挙げられる。これらの結晶核剤は公知のものであり、無機系結晶核剤以外の物であるなら、いずれのものを使用しても差し支えない。これら結晶核剤を0.002～0.3wt%配合する。結晶核剤を添加しない場合、剛性低下が著しく、実際の使用の際にシートに縦ジワが発生する等の問題が生じる。添加量が0.002wt%以下では結晶核剤添加の効果がなく、0.3wt

%以上では添加しても効果の増大が期待出来ない。上記結晶核剤をホモポリプロピレンに添加する。添加は重合時に際しても良いし、重合後に添加しても良い。

【0008】本発明に用いられるホモポリプロピレンは、いかなる重合方法(例 溶液重合法、バルク重合法、気相重合法)、いかなる触媒(三塩化チタン型触媒、塩化マグネシウム担持型触媒、メタロセン触媒)で製造されたものでも良い。本発明に使用されるホモポリプロピレンは剛性付与のために使用される。添加量は57～84重量(wt)%である。添加量が57重量(wt)%以下では剛性低下が著しく、84重量(wt)%以上では成形温度幅が広がらない。本発明に使用されるランダムポリプロピレンはいかなる重合方法(溶液重合法、バルク重合法、気相重合法)、いかなる触媒(三塩化チタン型触媒、塩化マグネシウム担持型触媒、メタロセン触媒)で製造されたものでも良い。これらランダムポリプロピレンは成形温度幅を広げることと目的として添加される。ランダムポリプロピレンには、種々のエチレン含有率を有するものがあるが、その中でもエチレン含有率が0.1～5.0wt%のランダムポリプロピレンが好適であり、その添加量は10～25wt%が良い。エチレン含有率が0.1wt%以下では成形温度幅が広がらず、5.0wt%以上ではシートは剛性、防湿性低下が著しい。またランダムポリプロピレンの添加量が10wt%以下では成形温度幅が広がらず、添加量が25wt%以上ではシートは剛性低下、防湿性低下が著しい。

【0009】本発明に使用される熱可塑性エラストマーは室内において、弾性を示す天然及び合成の重合物である。具体的には、天然ゴム、ポリブタジエン、ポリイソブレン、ポリクロロブタジエン、スチレン-ブタジエン共重合体(ランダム共重合体、ブロック共重合体、グラフト共重合体等全て含む)、アクリロニリル-ブタジエン共重合体、イソブレン-イソブタジエン共重合体、イソブレン-ブタジエン共重合体、エチレン-αプロピレン-ブタジエン三元共重合体、エチレン-αプロピレン-ブタジエン三元共重合体、チオロールゴム、多添加ゴム、ポリウレタンゴム、ポリエチレンゴム、エポキシ樹脂とドリンゴ等及びこれらの熱可塑性エラストマーに水素添加した重合体 例えは水添スチレン-ブタジエン共重合体、水添スチレン-イソブレン共重合体等が挙げられる。本発明に使用される熱可塑性エラストマーは耐衝撃性向上を目的として添加され、その中でも水添スチレン-ブタジエン共重合体あるいは水添スチレン-イソブレン共重合体が望ましい。これら熱可塑性エラストマーの添加量は5～10wt%である。添加量が5wt%以下では耐衝撃性が悪く、実用に耐えない。添加量が10wt%以上ではシートは剛性、防湿性が著しく低下する。これら熱可塑性エラストマーにおいては、スチレン含有率が11～35

%である水添スチレン-ブタジエン共重合体、または水添スチレン-イソプレン共重合体が望ましい。スチレン含有率が1%以下では衝撃性改良の効果が無く、35%を越えると透明性が悪化する。これら水添スチレン-ブタジエン共重合体、または水添スチレン-イソプレン共重合体は、いかなる重合方法(例 乳化重合、溶液重合、懸濁重合、塊状重合)、いかなる触媒(例 過酸化剤、トリアルキルアルミニウム、ハロゲン化リチウム、ニッケル系触媒)で製造されたものでもよい。水素添加触媒としては、パラジウム、白金等の貴金属をシリカ、ケイソウ土等に担持させた触媒、チタン化合物と有機金属化合物(リチウム、アルミニウム等)からなる触媒が使用される。

【0010】本発明に使用される石油樹脂は透明性、成形性、防湿性、及び剛性を向上させるために添加される。石油樹脂は合成樹脂系のもので天然樹脂系のものに大別出来、合成樹脂系のものである。脂肪族系、芳香族炭化水素樹脂系、脂環族飽和炭化水素樹脂系、共重合系等があり、臭気と透明性から脂環族系飽和炭化水素樹脂が望ましい。本発明においては、石油樹脂を1~8wt%添加する。添加量が1wt%以下では成形性、防湿性、透明性、剛性に効果が認められない。また添加量が8wt%以上では耐衝撃性に劣り、n-ヘプタンを溶媒とする残留モノマーや低分子量化合物の抽出量が150ppmを越えるため、厚生省告示第20号に適合しない。

【0011】本発明のポリプロピレンシートは製造方法は特に限定されたものではないが押出成形が好適であり、シート両面に性能を損なわない範囲内でその他の樹脂層を設けても良い。また本発明においては、必要に応じて基本的性質を損なわない範囲で添加剤、例えば安定剤、帯電防止剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤、滑剤、充填剤、染料、顔料、中和剤、スリップ(アンチブロッキング剤)等を添加しても良い。本発明のシートの全体厚みについては特に限定するものではないが、0.2~0.5mmの範囲であり、特に0.25~0.4mmの範囲がPTP用シートの厚みとして適当である。

表 1

	実 施 例					
	1	2	3	4	5	6
HP-1	70	80	84	57	70	
HP-2					69.7	
EPR-1	20		10	25	20	20
EPR-2		10				
HSBR-1	5	5	5	10		5
SEPS-1					5	
P-1	5	5	1	8	5	5
N-1						0.3

*【0012】

【実施例】以下実施例により、本発明を説明するが、これは単なる例示であり、本発明はこれに限定するものではない。表1及び表2に示す配合を行い、スクリーン径65mmの押出機を使用して、ポリプロピレン系樹脂を押出、単層ダイスをを用い金属製の60℃の冷却ロール及び金属製のタッチロールによりシーティングを行い、表面を鏡面化した。シートの厚みは300μmに設定した。下記に本発明の実施例及び比較例の評価結果を表3、表4及び表5に示す。

【0013】*実施例及び比較例に使用した原材料

- ・ポリプロピレン単重合体(ホモポリプロピレン)
- HP-1 チツボポリプロ HT-6004 チツボ株式会社製(結晶核剤含有率0.3wt%)
- HP-2 三井ノブレン JS-G 三井東圧化学株式会社製(結晶核剤無添加)
- ・エチレン-プロピレンランダム共重合体(ランダムポリプロピレン)
- EPR-1 エチレン含有率2wt% MI=1.5
- EPR-2 エチレン含有率5wt% MI=1.2
- EPR-3 エチレン含有率51wt% MI=8.0
- ・熱可塑性エラストマー
- ・水素添加スチレン-ブタジエン共重合体
- HSBR-1 ダイナロン 1910P 日本合成ゴム株式会社製(スチレン含有率30wt%)
- HSBR-2 ダイナロン 1320P 日本合成ゴム株式会社製(スチレン含有率10wt%)
- ・水素添加スチレン-イソプレン共重合体
- SEPS-3 ハイブラー HVS-3 株式会社クラレ製(スチレン含有率30wt%)
- ・石油樹脂
- P-1 アルコン P125 荒川化学工業株式会社製(脂環族飽和炭化水素化合物)
- ・結晶核剤
- N-1 グルオール D 新日本理化学株式会社製(ジベンジリデンソルビトール)

【0014】

表 2

	比較例									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
HP-1	85	40	90	80	75	65	72	60	70	
HP-2										70
EPR-1	5	50			20	20	20	20	20	20
EPR-3				10						
HSBR-1	5	5	5	5	5	5	3	15		5
HSBR-2									5	
P-1	5	5	5	5		10	5	5	5	5

【0015】各評価方法は以下の通りである。

・剛性の評価

オルゼン式曲げ剛性率 JIS-K-7106に従って測定した。

・耐衝撃性の評価

デュボン衝撃値 JIS-K-7211に従って測定した。

・透明性の評価

光線透過率、曇度、内部ヘイズについてはJIS-K-6714に従って測定した。

・n-ヘプタン抽出の評価

厚生省告示第20号に従って測定した。

・成形性の評価

シーケーディー(株)製 プリスターバック成形機FBP-M2を使用してショット数を80ショット/分に固定して、成形温度を138℃から2℃ずつ150℃まで上昇させて、各成形温度において成形を行った。成形は、ポケット形状が底部10mmφ、上部9mmφ、深さ4.1mm、1ショット10ポケット2面の型を用いてプラグアシスト圧空成形を行った。成形性は、成形温度幅で評価した。成形温度幅は、成形型への型追従性と*

*ポケット天部の外観ムラ、天部の厚みの総合評価で成形温度幅を求めた。型追従性と天部の外観ムラは目視による官能評価で、天部の厚みはダイヤルゲージによる測定により求めた。

【0016】・カールの評価

上記条件の中で、良好な成形性を示す条件で成形し、内容物を充填せずにアルミ箔と180℃でシール、130℃でスリッターを入れた後、巾37mm、長さ94mm、コーナー5mmRに打ち抜いた成形品をフラットな面に置き、打ち抜き10分後の成形品のソリを測定した。6個の成形品について、各成形ポケット横の6カ所を測定し平均値を求めて評価した。アルミ箔は硬質アルミ箔20μmにマレイン化ポリプロピレン5μmを塗布したものを使用した。

・防湿性の評価

シートをカップ状に真空成形し、シリカゲルを充填後、アルミ箔にてシールを行い、40℃、90%RHの条件に調整した恒温恒湿槽に10日間保存し、1m²、24時間当たりの重量変化を求めて評価した。

【0017】

表 3

	実施例					
試験項目(単位)	1	2	3	4	5	6
曲げ剛性率 MD	12600	12300	13800	10000	12600	10000
(kgf/cm ²) TD	12000	11900	13500	9800	12000	10000
デュボン衝撃値 23℃	10.8	11.9	12.0	20.8	10.8	10.3
(kgf-cm) -20℃	6.7	7.8	7.9	10.3	6.7	5.1
透湿度 (g/m ² ・24hr)	0.50	0.53	0.65	0.60	0.50	0.55
光線透過率(%)	91.9	91.6	91.7	91.9	91.6	91.7
曇度(%)	12.3	11.5	13.1	14.1	11.5	9.0
内部ヘイズ(%)	10.4	9.6	11.2	11.2	9.6	7.1
成形性(℃)	8	8	7	9	8	8
カール(mm)	2.0	2.0	1.8	1.5	2.0	2.4
n-ヘプタン抽出 (ppm)	56	58	4	125	59	119

【0018】

50

表 4

		比 較 例				
試験項目 (単位)		1	2	3	4	5
曲げ剛性率	MD	14100	6200	13600	8900	12600
(kgf/cm ²)	TD	13600	6000	13000	8500	12000
デュボン衝撃値	23℃	9.9	15.0	14.0	17.8	12.3
(kgf・cm)	-20℃	4.9	7.8	6.9	8.5	6.5
透湿度						
(g/m ² ・24hr)		0.52	0.85	0.45	0.80	0.78
光線透過率 (%)		91.4	91.6	91.7	91.8	91.9
曇度 (%)		13.0	14.5	12.3	10.5	14.5
内部ヘイズ (%)		11.0	12.6	9.0	8.6	9.8
成形性 (℃)		1	12	0	8	5
カール (mm)		2.0	3.5	3.2	3.6	2.5
n-ヘプタン抽出						
(ppm)		11	148	35	160	1

【0019】

表 5

		比 較 例				
試験項目 (単位)		6	7	8	9	10
曲げ剛性率	MD	12300	13000	7500	12500	7800
(kgf/cm ²)	TD	10900	12900	7800	12100	7500
デュボン衝撃値	23℃	7.7	7.5	28.0	4.8	12.6
(kgf・cm)	-20℃	3.8	2.2	15.0	1.9	9.7
透湿度						
(g/m ² ・24hr)		0.44	0.52	0.81	0.57	0.75
光線透過率 (%)		91.6	91.7	88.8	91.9	91.7
曇度 (%)		11.5	12.3	16.1	10.9	23.0
内部ヘイズ (%)		8.7	9.0	14.2	9.0	15.6
成形性 (℃)		8	7	7	8	9
カール (mm)		2.2	2.8	1.9	2.9	4.5
n-ヘプタン抽出						
(ppm)		178	51	159	56	118

【0020】・評価結果

本発明における実施例は全て要求性能を満足している。
 比較例1は成形性に劣り、比較例2は剛性、防湿性、カールに劣る。比較例3は成形性、カールに劣り、比較例4は剛性、防湿性、カール、n-ヘプタンによる抽出に劣る。比較例5は防湿性、成形性に劣り、比較例6は耐衝撃性、n-ヘプタンによる抽出に劣る。比較例7は耐衝撃性に劣り、比較例8は剛性、透明性、n-ヘプタンによる抽出に劣る。比較例9は耐衝撃性に劣る。比較例*

* 10は剛性、防湿性、透明性、カールに劣る。

【0021】

【発明の効果】本発明の方法に従うと、剛性、防湿性、透明性、成形性、耐衝撃性に優れ、厚生省告示第20号に適合したシートを得ることが出来るうえ、従来のポリプロピレン系シートよりもアルミシール後のカールを大きく抑制することが出来るので、PTP用ポリプロピレン系シートとして好適である。

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application]the press through pack package (it abbreviates to PTP below) by which this invention is used for a package of drugs, such as a tablet and a capsule, -- it is related with the polypropylene system sheet of business.

[0002]

[Description of the Prior Art]PTP is a packaging form used for a package of drugs, such as a tablet and a capsule, the pocket portion obtained by fabricating a plastic sheet in required pocket shape is filled up with contents (a tablet, a capsule, etc.), and the packaging form which carries out the seal of the aluminum foil which applied adhesives like a lid is said. By pushing a sheet forming portion with a finger, the contents with which it filled up break through aluminum foil, and are taken out. As base resin used for the sheet for PTP from the former, polyvinyl chloride resin has mainly been used from the superiority and cost aspects of performance, such as curl nature after transparency, a moldability, rigidity, and an aluminum seal. However, since polyvinyl chloride resin is inferior to dampproofing when the drugs which are contents dislike moisture absorption, the method of raising dampproofing is performed by coating with dampproof excellent polyvinylidene chloride resin on a polyvinyl-chloride-resin sheet. The method of raising dampproofing is also taken by carrying out the pillow package of the PTP itself by aluminum. However, since both of the methods require a man day and serve as a cost hike, examination is performed in order to improve such a method. Polyvinyl chloride resin and polyvinylidene chloride resin have a problem from the environmental aspect that gaseous chlorine is emitted, in the case of incineration processing, and the actual condition is avoided in recent years. From the above problems, examination of polypropylene resin is performed as a charge of PTP material which changes to polyvinyl chloride resin or polyvinylidene chloride resin, and polypropylene resin is actually used in part. However, although polypropylene resin

is excellent in dampproofing and a cost aspect as compared with polyvinyl chloride resin, it is inferior to a moldability, transparency, and shock nature, and also has the problem that the curl after an aluminum seal is large.

[0003]About especially the moldability, the moldability is especially inferior in polypropylene resin as compared with polyvinyl chloride resin. Generally the moldability is estimated by the temperature width which can be fabricated.

The direction of polyvinyl chloride resin has wide molding temperature width.

As an improved method of a moldability, the method (JP,59-143613,A, JP,2-302445,A) of adding petroleum resin to polypropylene resin and the method (JP,53-66952,A) of adding random polypropylene to polypropylene resin are known. In the case of the former, a moldability and transparency are improved, but when hot forming is carried out, in order to cause adhesion, and to become an opaque product, and for molding temperature width to become narrow, or for elongation to occur with heating at the time of molding and to cause pitch gap, there is a problem that uniform shaping cannot be performed. In order to cause curl with a final product, commodity value is spoiled, or the problem at the time of accumulation is also produced. The sampling volume of the residual monomer which uses n-heptane as a solvent, or a low molecular weight compound increases with increase of the addition of petroleum resin, and it becomes incongruent at Notice of the Ministry of Health and Welfare No. 20. In the case of the latter, there is a problem that the rigidity of a sheet falls with addition increase according to increase of an addition although molding temperature width spreads. When a rigid small sheet is covered over a high-velocity-forming machine, since the tension concerning a sheet is strong, a sheet is extended, and there is a problem that vertical JIWA occurs. Therefore, the rigidity of the sheet which is a grade which vertical JIWA does not generate was required for the sheet, and the former was difficult for controlling curl, with the rigidity of a sheet maintained and making a moldability hold.

[0004]moreover -- shock resistance -- gay polypropylene -- ordinary temperature and low temperature -- also at which temperature, shock resistance is low. The method of adding random polypropylene in gay polypropylene as a shock-proof improved method and the method of adding thermoplastic elastomer are known. In the case of the former, the shock nature in ordinary temperature improves greatly, but most improvement of shock nature is not accepted in low temperature. In the case of the latter, shock resistance was improved with addition increase, but there was a problem of a rigid and dampproof fall or the fall of transparency simultaneously. Since linear expansion of polypropylene resin is large about curl as compared with polyvinyl chloride resin, The contraction after an aluminum seal was large, therefore the product curled to aluminum foil and an opposite hand, and there was a problem that commodity value was spoiled or troubles, such as accumulation impossible on an automatic packaging line, occurred. When the method for improving curl is made in the

multilayered sheet and uses high crystalline polypropylene of high rigidity for an outer layer, Enlarge rigidity and rigidity is enlarged by using high crystalline polypropylene of high rigidity for the method (JP,5-64864,A) and outer layer which improve curl, By furthermore introducing random polypropylene into the sealant layer of a inner layer, seal temperature is lowered and the method (JP,5-170259,A) of controlling curl is mentioned. In the former method, although most curl was not improved but curl was improved by the latter method, the moldability of a sheet and transparency got remarkably bad on the contrary, and the sheet which is equal to actual use was not obtained. As mentioned above, the military requirement of a sheet for PTP called rigidity, shock resistance, transparency, a moldability, dampproofing, and the low curl nature after an aluminum seal is received, The actual condition was that there is no polypropylene system sheet which is in the situation where other military requirements cannot be satisfied even if it can satisfy a certain military requirement among the above-mentioned military requirements as for the polypropylene sheet from the former, and can fill the military requirement of all above.

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]The place which it was made as a result of various examination in order that this invention might solve the above-mentioned problem, and is made into the purpose, By adding a nucleus agent, petroleum resin, an ethylene-propylene random copolymer, a hydrogenation styrene butadiene copolymer, or a hydrogenation styrene isoprene copolymer to a polypropylene homopolymer, It excels in rigidity, shock resistance, dampproofing, transparency, and a moldability, Notice of the Ministry of Health and Welfare No. 20 is suited, and it is in providing the polypropylene system sheet for PTP in which the curl after an aluminum seal was controlled conventionally.

[0006]

[Means for Solving the Problem]This invention The polypropylene homopolymer (it abbreviates to gay polypropylene below) 57 of 0.002 to 0.3 % of the weight (wt%) of nucleus agent content - 84wt%, It is a polypropylene system sheet for PTP consisting of the petroleum resin 1 - 8wt% and the thermoplastic elastomer 5 - 10wt% ethylene content 0.1 - 5.0wt% of the ethylene-propylene random copolymer (it abbreviates to random polypropylene below) 10 - 25wt%.

[0007]A nucleus agent used for this invention is an organic system nucleating additive or a high melting point polymer nucleating additive, and is added for the purpose of rigid grant and improvement in transparency. Although there are an organic system nucleating additive, an inorganic system nucleating additive, and a high melting point polymer nucleating additive in a nucleus agent, since an inorganic system nucleating additive checks transparency, it cannot be used. As an organic system nucleating additive, a sorbitol system derivative, dicarboxylic acid metal salt, metal salt of aromatic carboxylic acid, metal salt of organic phosphorus acid, etc. are mentioned. As for a high melting point polymer nucleating additive, polyvinyl

cyclohexane, polyvinyl cyclopentane, the poly 3-methylpentene- 1, the poly 3-methylbutene 1, alkenyl silane, etc. are mentioned. If these nucleus agents are publicly known and are things other than an inorganic system nucleus agent, even if they use which thing, they will not interfere. these nucleus agents -- 0.002 - 0.3wt% -- it blends. When not adding a nucleus agent, the reduction of rigidity is remarkable and a problem of vertical JIWA occurring on a sheet in the case of actual use arises. There is no effect of nucleus agent addition of an addition at less than 0.002wt%, and at more than 0.3wt%, even if it adds, increase of an effect is not expectable. The above-mentioned nucleus agent is added in gay polypropylene. Addition may be performed at the time of a polymerization and it may add after a polymerization.

[0008]Gay polypropylene used for this invention could be manufactured with what kind of polymerization method (the example solvent polymerizing method, a bulk polymerization method, gas phase polymerization process) and what kind of catalyst (a titanium trichloride type catalyst, a magnesium chloride support type catalyst, a metallocene catalyst). Gay polypropylene used for this invention is used for rigid grant. An addition is 57 to 84 weight (wt) %. Addition of the reduction of rigidity is remarkable at below 57 weight (wt) %, and molding temperature width does not spread above 84 weight (wt) %. Random polypropylene used for this invention could be manufactured with what kind of polymerization method (the solvent polymerizing method, a bulk polymerization method, gas phase polymerization process) and what kind of catalyst (a titanium trichloride type catalyst, a magnesium chloride support type catalyst, a metallocene catalyst). These random polypropylene is added for the purpose of expanding molding temperature width. Although there are some which have various ethylene content in random polypropylene, random polypropylene whose ethylene content is 0.1 - 5.0wt% is preferred also in it, and 10 - 25wt% of the addition is good. In ethylene content, molding temperature width does not spread at less than 0.1wt%, but the rigidity of a sheet and a dampproof fall are remarkable at more than 5.0wt%. In an addition of random polypropylene, molding temperature width does not spread at less than 10wt%, but the reduction of rigidity of a sheet and a dampproof fall have a remarkable addition at more than 25wt%.

[0009]Thermoplastic elastomer used for this invention is polymer of nature and composition which shows elasticity in the interior of a room. Specifically Crude rubber, polybutadiene, polyisoprene, polychlorobutadiene, a styrene butadiene copolymer (a random copolymer and a block copolymer.) a graft copolymer etc. are included altogether -- a styrene isoprene copolymer (a random copolymer.) Acrylonitrile butadiene copolymers included altogether, such as a block copolymer and a graft copolymer, An isoprene isobutylene copolymer, an isobutylene-butadiene copolymer, An ethylene-propylene-diene ternary polymerization object, an ethylene-propylene-butene ternary polymerization object, Polymer which hydrogenated these thermoplastic elastomer, such as thio roll rubber, many vulcanized gum, polyurethane rubbers, polyether rubber, and epichlorhydrin rubber For example, a hydrogenation styrene

butadiene copolymer and a hydrogenation styrene isoprene copolymer are mentioned. It is added for the purpose of shock-proof improvement, and thermoplastic elastomer used for this invention has a hydrogenation styrene butadiene copolymer or a desirable hydrogenation styrene isoprene copolymer also in it. An addition of these thermoplastic elastomer is 5 - 10wt%. At less than 5wt%, shock resistance of an addition is bad and it does not bear practical use. The rigidity of a sheet and dampproofing fall [an addition] remarkably at more than 10wt%. In these thermoplastic elastomer, a hydrogenation styrene butadiene copolymer whose styrene content is 11 to 35%, or a hydrogenation styrene isoprene copolymer is desirable. If styrene content does not have an effect of shock nature improvement at 11% or less and exceeds 35%, transparency will get worse. these hydrogenation styrene butadiene copolymer or a hydrogenation styrene isoprene copolymer -- what kind of polymerization method (an example emulsion polymerization.) It could be manufactured with solution polymerization, suspension polymerization, mass polymerization, and what kind of catalyst (an example peroxide, trialkylaluminium, lithium halide, nickel series catalyst). As catalysts for hydrogenation, a catalyst which made silica, diatomite, etc. support the precious metals, such as palladium and platinum, and a catalyst which consists of a titanium ghost and organic metallic compounds (lithium, aluminum, etc.) are used.

[0010]Petroleum resin used for this invention is added in order to raise transparency, a moldability, dampproofing, and rigidity. Petroleum resin can be divided roughly into a thing of a synthetic resin system, and a thing of a natural resin system, an aliphatic series system, an aromatic hydrocarbon resin system, an alicycle fellows saturated hydrocarbon resin system, a copolymerization system, etc. are one of things of a synthetic resin system, and its alicycle fellows system saturated hydrocarbon resin is desirable from a bad smell and transparency. in this invention -- petroleum resin -- 1 - 8wt% -- it adds. An addition is not accepted for an effect in a moldability, dampproofing, transparency, and rigidity at less than 1wt%. An addition is inferior to shock resistance at more than 8wt%, and in order that a sampling volume of a residual monomer which uses n-heptane as a solvent, or a low molecular weight compound may exceed 150 ppm, Notice of the Ministry of Health and Welfare No. 20 is not suited.

[0011]Although a manufacturing method in particular of a polypropylene system sheet of this invention was not limited, extrusion molding is preferred for it, and other resin layers may be provided in sheet both sides within limits which do not spoil performance. In this invention, an additive agent, for example, stabilizer, a spray for preventing static electricity, an ultraviolet ray absorbent, an antioxidant, lubricant, a bulking agent, a color, paints, a neutralizer, a slip (anti blocking agents), etc. may be added in the range which does not spoil basic nature if needed. Although it does not limit in particular for overall thickness of a sheet of this invention, it is the range of 0.2-0.5 mm, and the range of 0.25-0.4 mm is especially suitable as thickness of a sheet for PTP.

[0012]

[Example]Below, according to an example, although this invention is explained, this is mere illustration and this invention is not limited to this. Combination shown in Table 1 and 2 was performed, the extrusion machine with a screw diameter of 65 mm was used, a 60 ** metal cooling roller and metal touch rolls performed sheeting for the polypropylene resin using extrusion and a monolayer die, and the surface was mirror-plane-ized. The thickness of the sheet was set as 300 micrometers. The evaluation result of the example of this invention and a comparative example is shown in Table 3, 4, and 5 below.

[0013]* The raw material and the propylene homopolymer used for the example and the comparative example (gay polo propylene)

HP-1 Chisso polypropylene HT-6004 Chisso Corp. make (nucleus agent content 0.3wt%)

HP-2 Mitsui no BUREN JS-G Mitsui Toatsu Chemicals, Inc. make (nucleus agent additive-free)

- Ethylene-propylene random copolymer (random polypropylene)

EPR-1 ethylene-content 2wt% MI=1.5EPR-2 ethylene-content 5wt% MI=1.2EPR-3 ethylene-content 51wt% MI=8.0, thermoplastic elastomer, and hydrogenation styrene butadiene copolymer HSB-1. Die NARON 1910P Japan Synthetic Rubber Co., Ltd. make (styrene content 30wt%)

HSB-2 Die NARON 1320P Japan Synthetic Rubber Co., Ltd. make (styrene content 10wt%)

- Hydrogenation styrene isoprene copolymer SEPS-3 Hy Buller HVS-3 Kuraray Make (30-fold styrene content wt%)

- Petroleum resin P-1 Al Cong P125 Arakawa Chemical Industries, Ltd. make (alicyclic fellows saturated hydrocarbon compound)

- Nucleus agent N-1 All [gel] D New Japan Chemical Co., Ltd. make (dibenzylidenesorbitol)

[0014]

Table One fruit ** Example 1 2 3 4 56H.P.-1.70 80 84 57 70 HP-2. 69.7 EPR-1 20 10 25. 20 20 EPR-210 HSB-1. 5 5 5 10 5 SEPS-1 5. P-1 5 5 1 8 5 5N-1 0.3 table. 2 ratios ** Example 1 23 4 5 6 7 8.9 10H.P.-1 85 40 90 80. 75 65 72 60 70 HP-2 70 EPR-1 5 50 20 20 20 20 20 20 EPR-3 10 HSB-1 5 5 5 5 5 3 15 5 HSB-2 5P-1 5 5 5 5 10 5 5 5 5[0015]Each valuation method is as follows.

- Rigid rate of evaluation Olsen style flexural rigidity It measured according to JIS-K-7106.

- Shock-proof evaluation E. I. du Pont de Nemours impact resistance value It measured according to JIS-K-7211.

- About the evaluation light transmission of transparency, the degree of cloudy weather, and internal haze, it measured according to JIS-K-6714.

- It measured according to evaluation Notice of the Ministry of Health and Welfare No. 20 of n-heptane extraction.

- Evaluation CKD Corp. make of a moldability Blister pack making machine The shot number was fixed to a part for 80-shot/using FBP-M2, molding temperature was raised from 138 °C to every 2 °C 150 °C, and it fabricated at each molding temperature. Shaping performed plug assist pressure forming using the mold whose pocket shape is pars-basilaris-occipitalis 10mmphi, top 9mmphi, a depth of 4.1 mm, and one-shot the 2nd page of ten pockets. Molding temperature width estimated the moldability. Molding temperature width asked for molding temperature width by the overall evaluation of the mold flattery nature to a die, and the appearance nonuniformity of a pocket ceiling part and the thickness of a ceiling part. The appearance nonuniformity of mold flattery nature and a ceiling part is organic-functions evaluation by viewing, and asked for the thickness of the ceiling part by measurement by a dial gage.

[0016]- It fabricates on the conditions which show a good moldability in the evaluation above-mentioned conditions of curl, After putting in the seal at aluminum foil and 180 °C and putting in a slitting machine at 130 °C, without being filled up with contents, the mold goods pierced to 37 mm in width, 94 mm in length, and corner 5mmR were put on the flat field, and the camber of the mold goods 10 minutes after punching was measured. Six places beside [each] a shaping pocket were measured, and six mold goods were evaluated in quest of average value. Aluminum foil used what applied mallein-ized polypropylene 5micrometer to 20 micrometers of hard aluminum foil.

- Vacuum forming of the dampproof assessment sheet was carried out to cup shape, aluminum foil performed the seal after being filled up with silica gel, and it saved for ten days at 40 °C and the homiothermal constant humidity chamber adjusted to the conditions of RH 90%, and evaluated in quest of 1-m² and the weight change per 24 hours.

[0017]

Table Three fruits °C Example test item (unit) 1 2.3 4 5 Rate of 6 flexural rigidity MD 12600. 12300 13800 10000 12600. 10000 (kgf/cm²). TD 12000 11900 13500. 9800 12000 10000 E. I. du Pont de Nemours impact resistance value . 23 °C 10.8 11.9 12.0 20.8. 10.8 10.3(kgf-cm)-20 °C. 6.7 7.8 7.9 10.3 6.7. 5.1 moisture vapor transmission (g/m² and 24hr). 0.50 0.53 0.65 0.60. 0.50 0.55 Light transmission (%) 91.9. 91.6 91.7 91.9 91.6. 91.7 The degree of cloudy weather (%) 12.3 11.5. 13.1 14.1 11.5 9.0 Internal Hayes (%). 10.4 9.6 11.2 11.2 9.6 7.1 -- moldability (°C) 8 8 7 9 8 8 -- curl (mm) 2.0 2.0 1.8 1.5 2.0 2.4 n-heptane extraction (ppm) -- 56 58 4 125 59 119

[0018]

Table 4 ratios °C Example test item (unit) 1 2.3 4 Rate of 5 flexural rigidity MD 14100. 6200 13600 8900 12600. (kgf/cm²) TD 13600. 6000 13000 8500 12000. E. I. du Pont de Nemours impact resistance value 23 °C 9.9 15.0. 14.0 17.8 12.3 (kgf-cm). -20 °C 4.9 7.8 6.9 8.5. 6.5 moisture vapor transmission (g/m² and 24hr). 0.52 0.85 0.45 0.80. 0.78 Light transmission (%)

91.4 91.6. 91.7 91.8 91.9 -- the degree of cloudy weather (%). 13.0 14.5 12.3 10.5. 14.5
 internal Hayes -- (%) 11.0 12.6 9.0 8.69.8 -- moldability (**) 1 12 0 8 5 -- curl (mm) 2.0 3.5 3.2
 3.6 2.5 n-heptane extraction (ppm) -- 11 148 35 160 1[0019]
 Table 5 ratios ** Example test item (unit) 6 7.8 9 Rate of 10 flexural rigidity MD 12300. 13000
 7500 12500 7800. (kgf/cm²) TD 10900. 12900 7800 12100 7500. E. I. du Pont de Nemours
 impact resistance value 23 ** 7.7 7.5 28.0. 4.8 12.6(kgf-cm)-20 **. 3.8 2.2 15.0 1.9 9.7. moisture
 vapor transmission (g/m² and 24hr). 0.44 0.52 0.81 0.57. 0.75 Light transmission (%) 91.6 91.7.
 88.8 91.9 91.7 -- the degree of cloudy weather (%). 11.5 12.3 16.1 10.9. 23.0 internal Hayes --
 (%) 8.7 9.0 14.2 9.0 15.6 moldability (**) 8 7 7 8 9 -- curl (mm) 2.2 2.8 1.9 2.9 4.5 n-heptane
 extraction (ppm) -- 178 51 159 56 118[0020]- All the examples in evaluation result this
 invention have satisfied the military requirement. The comparative example 1 is inferior to a
 moldability, and inferior to rigidity, dampproofing, and curl in the comparative example 2. The
 comparative example 3 is inferior to a moldability and curl, and the comparative example 4 is
 inferior to rigidity, dampproofing, curl, and extraction by n-heptane. The comparative example
 5 is inferior to dampproofing and a moldability, and the comparative example 6 is inferior to
 extraction by shock resistance and n-heptane. The comparative example 7 is inferior to shock
 resistance, and the comparative example 8 is inferior to extraction by rigidity, transparency,
 and n-heptane. The comparative example 9 is inferior to shock resistance. The comparative
 example 10 is inferior to rigidity, dampproofing, transparency, and curl.
 [0021]

[Effect of the Invention]When the method of this invention is followed, it excels in rigidity,
 dampproofing, transparency, a moldability, and shock resistance, Since the sheet which suited
 Notice of the Ministry of Health and Welfare No. 20 can be obtained and also the curl after an
 aluminum seal can be greatly controlled rather than the conventional polypropylene system
 sheet, it is suitable as a polypropylene system sheet for PTP.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1]57 to 84 % of the weight of polypropylene homopolymers of 0.002 to 0.3 % of the weight of nucleus agent content, A polypropylene system sheet for PTP consisting of 10 to 25 % of the weight of ethylene-propylene random copolymers of 0.1 to 5.0 % of the weight of ethylene content, 1 to 8 % of the weight of petroleum resin, and 5 to 10 % of the weight of thermoplastic elastomer.

[Claim 2]The polypropylene system sheet according to claim 1, wherein thermoplastic elastomer is a hydrogenation styrene butadiene copolymer of 11 to 35 % of the weight of styrene content, or a hydrogenation styrene isoprene copolymer of 11 to 35 % of the weight of styrene content [Claim 3]The polypropylene system sheet according to claim 1, wherein petroleum resin is alicycle fellows saturated hydrocarbon resin.

[Translation done.]